

Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



(11) EP 0 885 653 A2

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:  
23.12.1998 Patentblatt 1998/52

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>: B01J 10/00, B01J 12/00,  
B01J 14/00, B01J 15/00,  
B01J 16/00, B01J 19/24

(21) Anmeldenummer: 98110491.2

(22) Anmeldetag: 08.06.1998

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU  
MC NL PT SE  
Benannte Erstreckungsstaaten:  
AL LT LV MK RO SI

(30) Priorität: 16.06.1997 DE 19725378

(71) Anmelder:  
• Friedrich, Gerhard  
75428 Illingen (DE)  
• Opferkuch, Frank  
72622 Nürtingen (DE)  
• Gaiser, Gerd  
72768 Reutlingen (DE)

• Kolios, Grigorios  
70197 Stuttgart (DE)  
• Eigenberger, Gerhart  
70597 Stuttgart (DE)

(72) Erfinder:  
• Friedrich, Gerhard  
75428 Illingen (DE)  
• Opferkuch, Frank  
72622 Nürtingen (DE)  
• Gaiser, Gerd  
72768 Reutlingen (DE)  
• Kolios, Grigorios  
70197 Stuttgart (DE)  
• Eigenberger, Gerhart  
70597 Stuttgart (DE)

### (54) Kompakter Festbettreaktor für katalytische Reaktionen mit integriertem Wärmeaustausch

(57) Die Erfindung betrifft kompakte Reaktoren für katalysierte chemische Umsetzungen in gasförmiger und/oder flüssiger Phase, die von zwei Stoffströmen im Gleich- oder Gegenstrom durchströmt werden, wobei ein sehr guter Wärmekontakt zum Katalysator sowie zwischen den beiden Strömen gewährleistet ist.

Die erfindungsgemäßen Reaktoren bestehen aus parallelen Strömungskanälen (5) für die beiden Stoffströme (9), (10), die durch ziehharmonikaartige Faltung einer Trennwand (1) entstehen. In den so gebildeten Falten sind Wellstrukturen (4) so angebracht, daß durchgehende Strömungskanäle (6) für die Fluidströme entstehen. Die Wellstrukturen (4) sind dabei in Material, Wandstärke und Befestigung so ausgebildet, daß sie gleichzeitig dienen als

- Abstandhalter zwischen den gegenüberliegenden Falten der Trennwand (1),
- Rippen für einen verbesserten Wärmetransport zu/von der Trennwand (1)
- Katalysatorträger.

Die Strömungskanäle sind nach außen durch ein Gehäuse mit Ein-/Ausgängen für die beiden Stoffströme versehen und an ihren Stirnseiten dicht verschlossen.

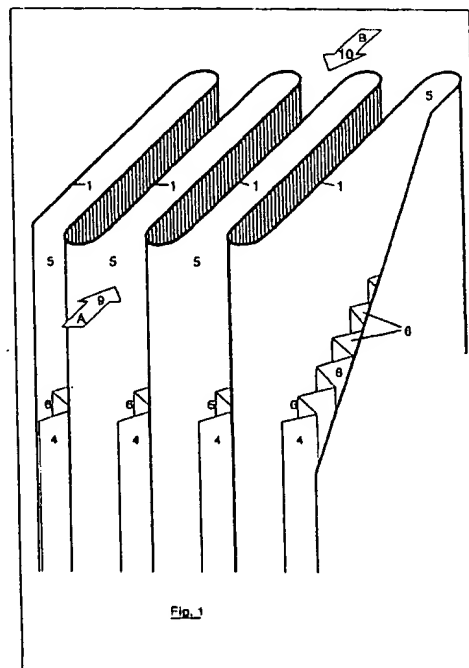


Fig. 1

EP 0 885 653 A2

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft kompakte Reaktoren für katalysierte chemische Umsetzungen in gasförmiger oder flüssiger Phase, die von zwei Stoffströmen im Gleich- oder Gegenstrom durchströmt werden, wobei ein sehr guter Wärmekontakt zum Katalysator und zwischen den beiden Strömen gewährleistet ist.

Entsprechende Reaktoren werden für unterschiedliche Aufgabenstellungen in der chemischen Reaktionstechnik benötigt. So besteht bei sog. „isothermen“ Festbettreaktoren die Aufgabe, Gase an festen Katalysatoren so reagieren zu lassen, daß die entstehende oder benötigte Reaktionswärme möglichst direkt von einem Wärmeträgerfluid aufgenommen oder abgegeben werden kann. Bei autothermen Festbettreaktoren soll die Wärme der heißen Reaktionsgase möglichst direkt auf den kalt einströmenden Zulauf übertragen werden. Bei endothermen Reaktionen wäre die direkte Kopplung mit einer im gleichen Temperaturbereich ablaufenden exothermen Begleitreaktion wünschenswert. Außerdem erfordert eine optimale Reaktionsführung häufig die Einstellung von speziellen, örtlich veränderlichen Temperaturprofilen, was durch eine spezielle Wärmeträgerführung oder die Einstellung von unterschiedlichen Temperaturstufen des Wärmeträgers erreicht werden kann.

Technische Festbettreaktoren sind heute entweder in Form von Schütttschichtreaktoren oder als Monolithreaktoren im Einsatz. Eine Wärmezufuhr oder abfuhr in/aus Schütttschichtreaktoren gelingt, wenn man den Katalysator in Rohre packt, die von einem Wärmeträger umströmt werden, oder wenn man Rohrschlangen mit einem Wärmeträger in der Schüttung plaziert. Durch die dabei vorliegenden längeren Wärmetransportwege treten allerdings größere Temperaturunterschiede zwischen Katalysator und Wärmeträger mit negativen Auswirkungen auf die chemische Umsetzung auf. Es wurden daher unterschiedliche Konzepte für katalytische Wandreaktoren vorgeschlagen, bei denen der Katalysator direkt auf die Reaktorwand aufgebracht wird. Bisher hat sich keines dieser Konzepte durchsetzen können, da Katalysatoren in der Regel nach einer bestimmten Laufzeit ersetzt werden müssen, was für Wandreaktoren bisher nicht befriedigend gelöst ist.

Monolithreaktoren zeichnen sich im Gegensatz zu Schütttschichtreaktoren durch eine sehr regelmäßige Katalysatorstruktur mit gleichmäßigen Reaktionsbedingungen und niedrigem Druckverlust aus. Allerdings sind bisher trotz intensiver Bemühungen keine überzeugenden Konzepte bekannt geworden, Monolithkatalysatoren in üblichen Rohrbündelreaktoren einzusetzen. Monolithkatalysatoren werden deshalb bisher in aller Regel adiabat betrieben. Allerdings wurde von Rhone Poulenc vorgeschlagen, keramische Monolithe so zu präparieren, daß benachbarte Kanäle mit unterschiedlichen Fluiden durchströmt werden können. Bei einer Desaktivierung des Katalysators muß der gesamte

Monolith ausgewechselt werden. Außerdem bereitet die getrennte Anströmung unterschiedlicher Kanäle und die mechanisch/thermische Stabilität keramischer Monolithe erhebliche Schwierigkeiten bei einem großtechnischen Einsatz.

Eine in jüngster Zeit sehr stark vertretene Forderung betrifft sehr kompakte Reaktoren mit intensivem Wärmeaustausch zu einem fluiden Wärmeträger. Unter dem Schlagwort „Mikroreaktoren“ werden solche Reaktoren für die dezentrale Produktion potentiell gefährlicher Chemikalien vorgeschlagen. Allerdings sind die dafür bekanntgewordenen Konzepte und Fertigungsverfahren aus der Mikroelektronik oder der Mikrosystemtechnik entlehnt und damit eher für Strukturen im  $\mu$ -Bereich als im mm-Bereich geeignet. Strömungskanäle mit Abmessungen kleiner als 1 mm erscheinen aber für viele reaktionstechnische Anforderungen weder erforderlich noch vorteilhaft.

Es stellt sich somit die Aufgabe, ein Reaktorkonzept zu entwickeln, bei dem der Katalysator ähnlich wie bei einem katalytischen Wandreaktor in sehr engem Kontakt zum Wärmeträger angeordnet ist, aber trotzdem einfach aus dem Reaktor entfernt und ersetzt werden kann. Dabei sollen die Strömungskanäle einen ähnlich guten Stoffübergang und niedrigen Druckverlust wie Monolithkatalysatoren besitzen. Außerdem soll der Reaktor einfach aufgebaut und zu fertigen sein und ein weites Spektrum unterschiedlicher Strömungsführungen von Fluid und Wärmeträger ermöglichen.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch einen Reaktor mit den Merkmalen des Anspruchs 1 gelöst. Nach Art eines Plattenwärmeaustauschers wird Reaktionsfluid und Wärmeträger in benachbarten Kanälen im Gleich- oder Gegenstrom geführt. Der Katalysator ist wie bei metallischen Autoabgaskatalysatoren auf einer Wellstruktur aufgebracht. Diese wird so in den Fluidkanälen befestigt, daß sie gleichzeitig Strömungskanäle für das Fluid bildet, als Abstandshalter zwischen den Wärmetauscherplatten fungiert und durch ihren direkten Kontakt für einen verbesserten Wärmetransport von den Wänden zum Katalysator und in das Fluid sorgt. Auf der Wärmeträgerseite werden vergleichbare Wellstrukturen, ggf. mit anderen Abmessungen und ohne Katalysatorbeschichtung, eingesetzt. Um die katalysatorbeschichteten Wellstrukturen ggf. auswechseln zu können, sind die Plattenpakete nicht wie in gelöteten oder geschweißten Plattenwärmetauscher starr miteinander verbunden, sondern flexibel aufgebaut. Das wird dadurch erreicht, daß die Trennwände aus einem längeren Blechband durch zieharmonikaartige Faltung hergestellt sind und von einem äußeren, demontierbaren Gehäuse umschlossen werden. Eine Konstruktion mit einer zieharmonikaförmigen Trennwand ist von Luft-Gegenstromwärmetauschern (System Thermo-Z) im Prinzip bekannt. Sie dient hier aber der Auswechselbarkeit der katalytisch beschichteten Wellstrukturen.

Die in Anspruch 1 beschriebene Grundform der Erfindung kann in geeigneter Weise ergänzt und an die

spezifischen reaktionstechnischen Anforderungen angepaßt werden. Entsprechende Ausgestaltungen sind in den Unteransprüchen beschrieben und werden anhand der nachfolgenden Abbildungen erläutert.

Es zeigen

Figur 1 einen Ausschnitt des erfindungsgemäßen Reaktors, bei dem der äußere Mantel entfernt ist

Figur 2 einen Reaktorquerschnitt und eine Frontansicht

Figur 3 drei Möglichkeiten für die Führung der Strömungswege

Figur 4 vier Varianten für die Ausbildung der Wellstrukturen 4 und

Figur 5 eine Variante in zylinderförmiger Anordnung

Fig. 1 zeigt einen Ausschnitt des erfindungsgemäßen Reaktors, bei dem der äußere Mantel einschließlich der oberen Abdeckung entfernt ist. Fluid A und B treten entlang der Strömungswege 9 und 10 an entgegengesetzten Seiten der ziehharmonikaförmigen Trennwand 1 in den Reaktor ein, verteilen sich auf die jeweiligen Strömungskanäle 5 und werden nach unten abgelenkt. Im Beispiel ist Fluid A (Strömungsweg 9) z.B. ein Reaktandengemisch, Fluid B (Strömungsweg 10) ein nicht reagierender Wärmeträger. Beide Fluide durchströmen die Strömungspfade 6, die von den Wellstrukturen 4 und den Wänden 1 gebildet werden. Die Wellstrukturen 4 sind im Strömungsweg 9 über eine bestimmte Länge mit Katalysator beschichtet.

Daran findet die Reaktion von Fluid A statt. Die freigesetzte oder benötigte Reaktionswärme wird zum großen Teil durch Wärmeleitung in der Struktur 4 auf die Wand 1 übertragen, da die Struktur beide Nachbarwände berührt. Sie wird auf der anderen Wandseite in ähnlicher Weise von einer anderen Struktur 4 aufgenommen und über diese Struktur oder direkt an das Wärmeträgerfluid B übertragen. Am unteren Ende des Reaktors hört die Struktur 4 früher auf als die Wand 1, so daß die Strömungswege 9, 10 in umgekehrter Richtung wie am gezeigten Kopf den Reaktor verlassen. Ein hier nicht gezeigter Reaktormantel umschließt den dargestellten Innenbereich von allen Seiten, so daß die Fluide A, B nur durch Einlässe am Kopf ein- und am Reaktorfuß austreten können.

Fig. 2 zeigt einen Schnitt (links) und eine Frontansicht (rechts) des Reaktors von Fig. 1 mit den beiden Fluid-einlässen 7 und -auslässen 8 und den Abdichtungen der Strömungskanäle 5 an beiden Stirnseiten 11, 12 des Reaktors.

Fig. 3 zeigt Reaktorvarianten mit drei unterschiedlichen Strömungsführungen für die beiden Fluide A, B. Die linke Konfiguration bietet sich an, wenn eine exotherme

Reaktion (Fluid A) so mit einer endothermen Reaktion (Fluid B) gekoppelt wird, daß die Reaktionswärme der exothermen Reaktion den Wärmebedarf der endothermen Reaktion liefert.

Fig. 3, Mitte, ist eine typische Konfiguration für die autotherme Reaktionsführung einer schwach exothermen Reaktion des Fluids A, wobei im unteren Teil des Reaktors der kalte Zulauf durch den warmen Ablauf vorgeheizt wird. Am Kopf befindet sich eine zusätzliche Heiz- oder Kühleinrichtung 13, durch die der Reaktor gezündet oder während des Betriebs Wärme abgeführt werden kann. Die beiden Stutzen am Kopf dienen zur Zuführung eines Fluid B (Seiteneinspeisung) bzw. zum Abzug eines Teilstroms.

Fig. 3, rechts, zeigt eine weitere Gestaltungsmöglichkeit, bei der ein Wärmeträger B im oberen Teil des Reaktors im Gegenstrom und im unteren Teil im Gleichstrom zu einem reagierenden Fluid A geführt wird.

Fig. 4 zeigt geeignete Querschnittsformen für die Wellstrukturen 4. Neben der Ausbildung mit geraden, durchgehenden Kanälen können auch technisch übliche Formen mit zickzackförmiger Kanalführung zum Einsatz kommen. Außerdem kann es zweckmäßig sein, im Bereich der Reaktionszone eine Folge von Katalysatoren unterschiedlicher Aktivität oder Spezifität einzusetzen. Das läßt sich in dem erfindungsgemäßen Reaktor einfach dadurch erreichen, daß Abschnitte von Wellstrukturen 4, die mit unterschiedlichem Katalysator beschichtet sind, hintereinander angeordnet werden.

Schließlich kann es auch sinnvoll sein, größere Strömungsquerschnitte auf der Seite des Fluids A als auf der Seite des Fluids B vorzusehen. Das läßt sich erfindungsgemäß einfach dadurch erreichen, daß bei der Faltung der ziehharmonikaförmigen Trennwand 1 unterschiedliche Breiten der Strömungskanäle 5 vorgesehen werden und Strukturen 4 mit unterschiedlichen, an die Breite der Kanäle 5 angepaßten Amplituden verwendet werden.

Eine besondere Ausgestaltung der letztgenannten Variante stellt die Anordnung der ziehharmonikaförmigen Trennwand in einem Ringspalt gemäß Fig. 5 dar. Fluid A tritt in diesem Beispiel durch das Innenrohr 14 ein und verteilt sich auf die Strömungspfade 6, die durch die Wellstruktur 4 mit den inneren Falten der Trennwand 1 gebildet werden. Am unteren Ende des Reaktors strömt es in gleicher Weise in das Innenrohr 14 zurück. Fluid B wird über einen Ringraum 15 im äußeren Mantel zugeführt und strömt im Gleich- oder Gegenstrom zu Fluid A durch die äußeren Falten der Trennwand 1 durch den Apparat, wonach es den Apparat über einen weiteren Ringraum 15 verläßt. Die in Fig. 2 Mitte und rechts angegebenen Varianten lassen sich in analoger Weise in einer Konfiguration nach Fig. 5 realisieren. Ist Fluid B in Fig. 5 ein flüssiger Wärmeträger, so können die Wellstrukturen 4 zur Verbesserung des Wärmeübergangs in den Strömungskanälen 5 für Fluid B gegebenenfalls auch entfallen.

Zur besseren Verteilung der Fluide A, B auf die Breite

der Strömungskanäle 5 kann es sinnvoll sein, im Ein- und ggf. auch im Auslaufbereich 7, 8 Spacerstrukturen einzusetzen, die für eine gute Quervermischung Sorgen. Dafür bieten sich z.B. gekreuzte Stegstrukturen, Drahtgeflechte oder gekreuzte Wellstrukturen an.

Außerdem kann es sinnvoll sein, den Spalt zwischen der gefalteten Trennwand 1 und dem Reaktormantel 2 bzw. dem Innenrohr 4 durch Dichtmaterial (Dichtmatten, Blätten) zusätzlich abzudichten.

#### Bezugszeichenliste:

- |    |   |
|----|---|
| 1  | Trennwand (ziehharmonikaförmig)                   |
| 2  | Reaktormantel                                     |
| 3  | Katalysator (auf Strukturen 4 aufgebracht)        |
| 4  | Wellstruktur                                      |
| 5  | Strömungskanäle, gebildet durch Falten von 1      |
| 6  | Strömungspfade zwischen Wellstruktur 4 und Wand 1 |
| 7  | Fluideinlaß in Reaktor                            |
| 8  | Fluidauslaß aus Reaktor                           |
| 9  | Strömungsweg Fluid 1                              |
| 10 | Strömungsweg Fluid 2                              |
| 11 | obere Stirnseite des Reaktors                     |
| 12 | untere Stirnseite des Reaktors                    |
| 13 | Heiz-/Kühleinrichtung an Stirnseite               |
| 14 | Innenrohr   |
| 15 | ringförmiger Verteilkanal im Reaktormantel 2      |

#### Patentansprüche

1. Reaktor für katalysierte Gas-, Gas/Flüssigkeits- und Flüssigkeitsreaktionen mit zwei parallelen, durch fluidundurchlässige Wände getrennten Strömungswegen, **dadurch gekennzeichnet**, daß die die beiden Strömungswege (9), (10) trennenden Wände (1) in Strömungsrichtung ziehharmonikaförmig gefaltet sind, so daß die einzelnen Falten Strömungskanäle (5) bilden, und der Katalysator (3) auf profilierten Strukturen (4) aufgebracht ist, die sich in diesen Kanälen (5) befinden. Die Strukturen (4) bilden dabei zum einen mit der Wand durchgehende Strömungspfade (6), bewirken zum zweiten einen guten Wärmeleitungsfluß zu den beiden benachbarten Wänden (1) und sorgen zum dritten für einen konstanten Abstand zwischen benachbarten Wänden (1). Der Reaktor wird nach außen durch einen Mantel (2) abgeschlossen, der Ein- und Auslässe (7), (8) für die beiden Strömungswege (9), (10) enthält. An den beiden Stirnseiten (11), (12) sind alle Strömungskanäle verschlossen.
2. Reaktor nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß ein Strömungsweg (9) für die reagierenden Fluide und ein Strömungsweg (10) für einen strömenden Wärmeträger vorgesehen ist, wobei die profilierte Struktur (4) auf der Wärmeträgerseite keinen Katalysator enthält oder ganz fehlt.

3. Reaktor nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß in beiden Strömungswegen (9), (10) gleiche oder unterschiedliche Reaktionen im Gleich- oder Gegenstrom ablaufen, so daß durch den Wärmeaustausch zwischen den beiden Strömungswegen (9), (10) eine besonders günstige Reaktionsführung erfolgt.

4. Reaktor nach Anspruch 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß es sich bei den Strukturen (4) um durchgehend gewellte Strukturen von sinusförmiger, dreieckförmiger, trapezförmiger oder rechteckförmiger Profilierung handelt, so daß die Strömungspfade (6) im wesentlichen in Längsrichtung verlaufen, wobei die Strukturen (4) im Bereich der Ein- und Auslässe (7), (8) so abgeschrägt oder ausgespart sind, daß eine Zu-/Abströmung über die gesamte Tiefe der Strömungskanäle (5) erfolgt.

5. Reaktor nach Anspruch 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**, daß in die für reagierende Fluide vorgesehenen Strömungskanäle (5) Strukturen (4) so hintereinander angeordnet werden, daß sich Stufen in der katalytischen Aktivität und Spezifität ergeben.

6. Reaktor nach Anspruch 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet**, daß zusätzlich zu den Ein- und Auslässen (7), (8) an den Reaktorenden weitere Ein- und Auslässe über der Reaktorlänge verteilt angeordnet sind.

7. Reaktor nach Anspruch 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet**, daß die ziehharmonikaförmig gefaltete Wand (1) so um ein Innenrohr (14) gelegt ist, daß die Strömungswege (9) und (10) im Ringraum, gebildet vom Innenrohr (14) und dem äußeren Reaktormantel (2), verlaufen und Zu- sowie Ablauf für ein Fluid über das Innenrohr (14), für ein anderes Fluid über einen ringförmigen Verteilkanal (15) im Außenmantel (2) erfolgen.

8. Reaktor nach Anspruch 1 bis 7, **dadurch gekennzeichnet**, daß die ziehharmonikaförmige Wand (1) auf einer bestimmten Höhe des Reaktors durchbrochen ist oder fehlt, so daß sich die Strömungswege (9), (10) ganz oder teilweise vereinigen.

9. Reaktor nach Anspruch 8, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Wand (1) an einem Ende des Reaktors fehlt oder durchbrochen ist und der Zulauf für Strömungsweg (9) sowie der Ablauf für Strömungsweg (10) beide am anderen Ende des Reaktor liegen, so daß sich ein Gegenstrom des gleichen Fluids mit einseitiger Umlenkung einstellt.

10. Reaktor nach Anspruch 9, **dadurch gekennzeichnet**, daß im Bereich der Umlenkung eine Heiz-

zung oder Kühlung angebracht ist.

11. Reaktor nach Anspruch 1 bis 10, **dadurch gekennzeichnet**, daß im Reaktionsbereich auch die Wände (1) mit Katalysator beschichtet sind. 5
12. Reaktor nach Anspruch 1 bis 11, **dadurch gekennzeichnet**, daß in den wellstrukturfreien Teilen der Strömungskanäle (5) im Bereich der Ein- oder Auslaufbereiche (7), (8) Spacerstrukturen eingesetzt werden, die für eine gute Verteilung des Fluids über die gesamte Tiefe der Strömungskanäle (5) sorgen. 10
13. Apparat nach Anspruch 1 bis 12, **dadurch gekennzeichnet**, daß er vorwiegend oder ausschließlich zum Wärmetausch zwischen mehreren Fluiden eingesetzt wird. 15
14. Apparat nach Anspruch 1 bis 13, **dadurch gekennzeichnet**, daß der Apparat durch Profilierung und Verbindung von Kunststofffolien oder metallischen Blechen hergestellt wird. 20
15. Apparat nach Anspruch 1 bis 14, **dadurch gekennzeichnet**, daß der Apparat teilweise durch Extrusion aus polymeren oder keramischen Formmassen oder durch Extrusion oder Stranggießen aus Metallen hergestellt wird. 25

30

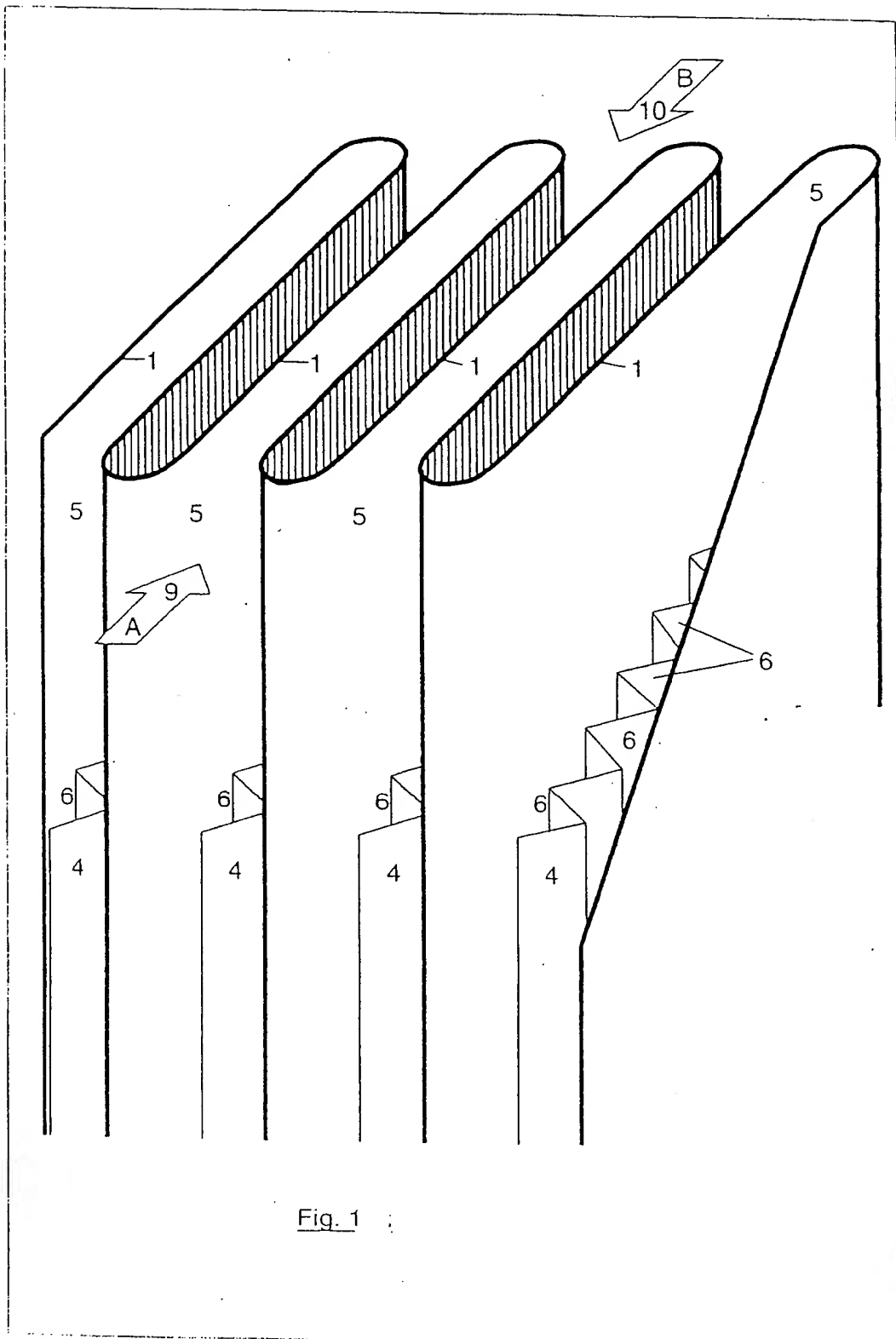
35

40

45

50

55



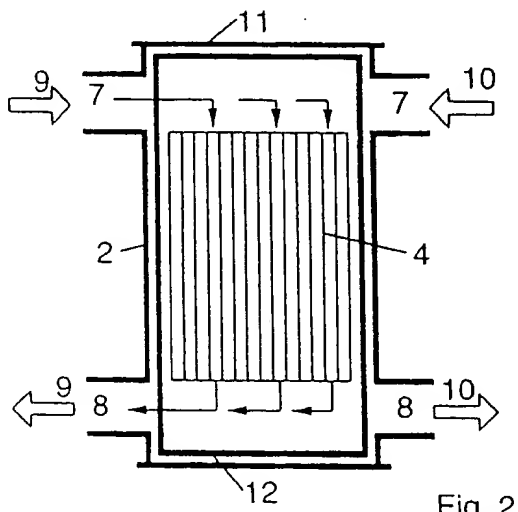


Fig. 2

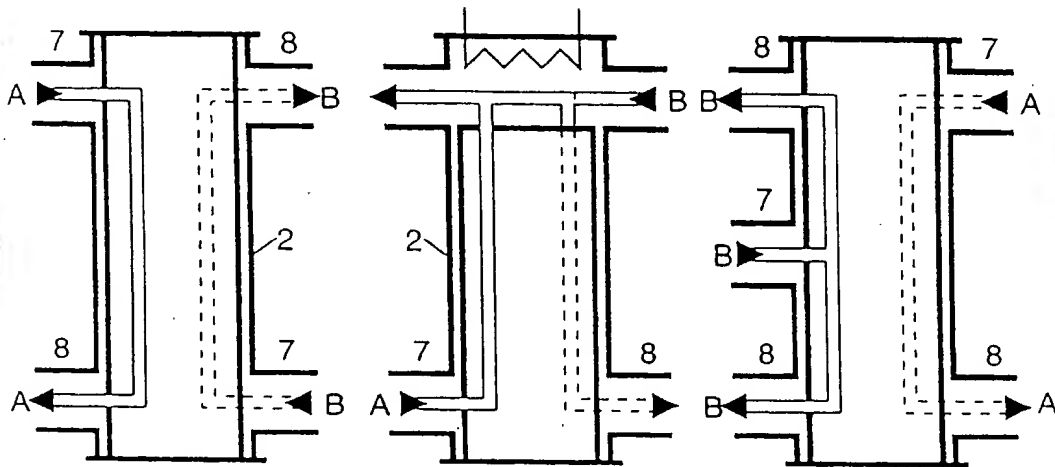
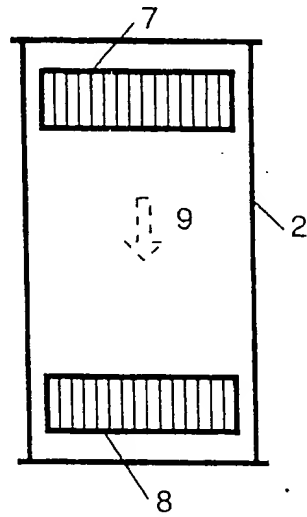


Fig. 3

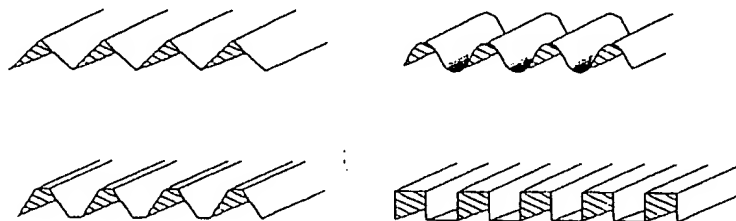
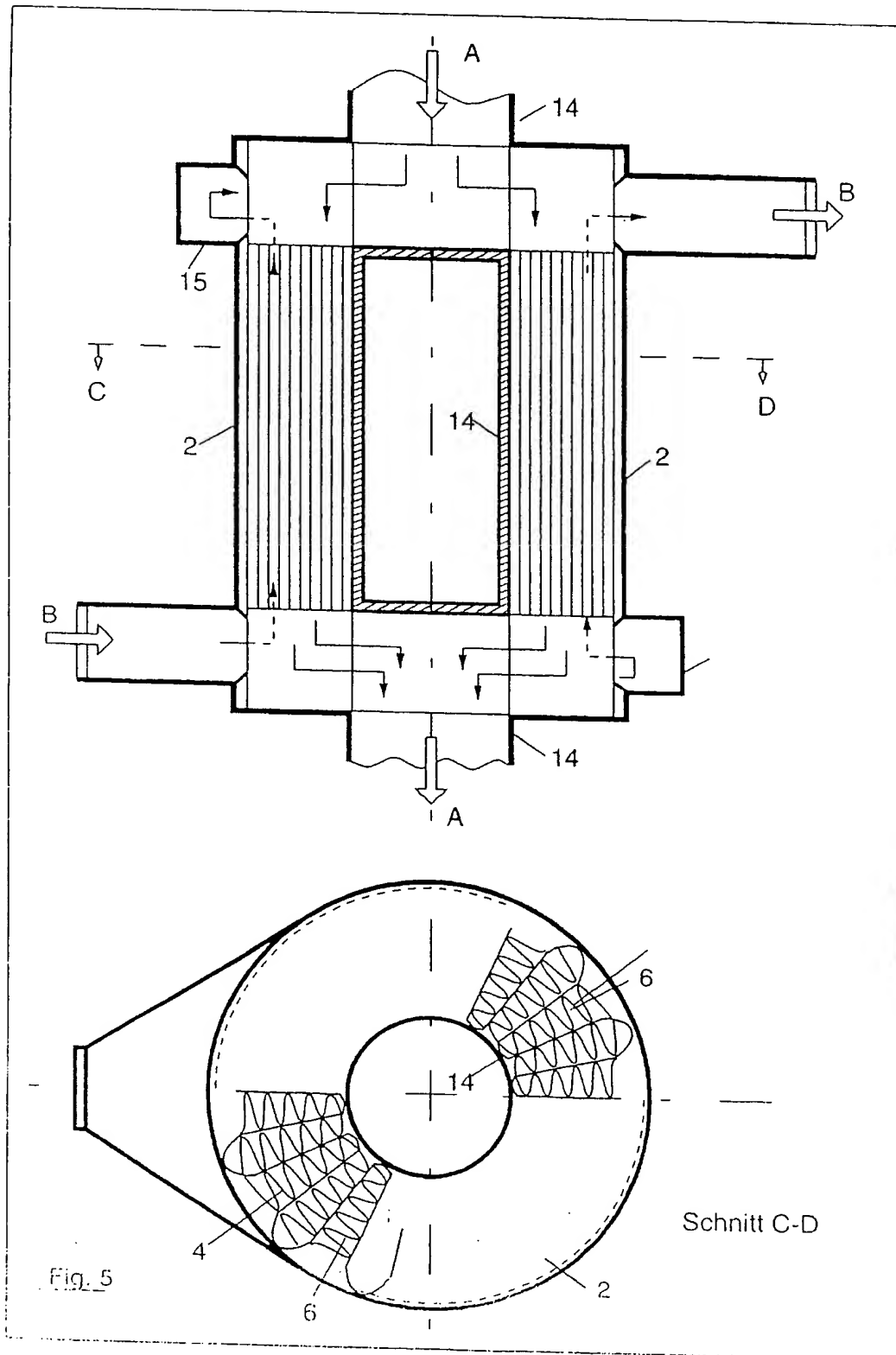


Fig. 4





(19) European patent office

(11) EP 0885653 A2

(12) **European Patent Registration**

(43) Publication date (51) Int. Cl.<sup>6</sup> B01J10/00, B01J 12/00  
23 Dec. 1998 Patent sheet 1998/52 B01J14/00, B01J 15/00  
(21) Registration number: 98110491.2 B01J16/00, B01J 19/24  
(22) Registration date: 8 June 1998

(84) Named contract countries:

AT BE CH CY DE DK ES FL FR GB GR IE IT LI LU MC NL PT SE

Named extended countries:

AL LT LV MK RO SI

(30) Priority: 16 July 1997 DE 19725378

(71) Registered (Assignees, applicants):

Friedrich, Gerhard, 75428 Illingen (DE)  
Opferkuch, Frank, 72622 Nürtingen (DE)  
Gaiser, Gerd, 72768 Reutlingen (DE)  
Kolios, Grigorios, 70197 Stuttgart (DE)  
Eigenberger, Gerhart, 70597 Stuttgart (DE)

(72) Inventors:

Friedrich, Gerhard, 75428 Illingen (DE)  
Opferkuch, Frank, 72622 Nürtingen (DE)  
Gaiser, Gerd, 72768 Reutlingen (DE)  
Kolios, Grigorios, 70197 Stuttgart (DE)  
Eigenberger, Gerhart, 70597 Stuttgart (DE)

(54) **Compact fixed bed reactor for catalytic reactions with  
integrated heat exchange**

(57) The invention regards the compact reactors for catalytic chemical conversions in gaseous or liquid phases. Two streams flow through the reactors in a co-current or counter-current arrangement. As such, very good thermal contact to the catalyst as well as between the two streams is ensured.

According to the invention the reactors comprise fluid channels (5) for the two streams (9), (10) that are made by an accordion folding of a separation wall (1). The wavy structure (4) is placed into the formed folding structure in such a way that the

channels are formed for the flow-through of the liquid stream. The wavy structures (4) are so built that in the aspects of material, wall strength and stress they also serve as

- Spacers between the laterally facing folding of the separation wall (1).
- Ribs for an improved heat transfer from/to the wall.
- Catalyst carrier.

The stream channels are covered outwards using an enclosure with the header and footer for both streams. Their forehead sides are hermetically sealed.

### **Description**

The invention regards the compact reactors for catalytic chemical conversions in gaseous or liquid phases. Two streams flow through the reactors in a co-current or counter current arrangement. As such, very good thermal contact to the catalyst as well as between the two streams is ensured.

The corresponding reactors are needed for various applications in the chemical reaction techniques. In the so-called "isothermal" fixed bed reactors, there are tasks to let the gas to react on the fixed catalyst so that the needed or generated reaction heat can be absorbed or given out as directly as possible from the heat carrier fluid. In the autothermal (homogeneous?) fixed bed reactors, the heat of the hot reaction gasses should be transferred as directly as possible to the influent cold stream. In the endothermic reactors it 's always desired to directly couple it with a parallel operational exothermic reaction at same temperature range. On the other hand, the optimization of a reaction often requires the adjustment of the specific, spatially varying temperature profiles that can be reached by the operation of a special heat carrier or the control of different temperature levels of the heat carrier.

Technically, today's fixed bed (Festbett) reactors in operation are either in the form of a fixed bed (Schütttschicht) reactor or a monolith reactor. The heat transfer from /to the reactors is achieved when the catalyst is packed in tubes around that the heat carrier (medium) flows, or when the tube coils with heat carrier in it are placed inside the bed. However, through the described longer heat transport path larger temperature

difference between the catalyst and the heat carrier occurs with a negative effect on the chemical conversion. Thus, different concept for catalytic wall-reaction is herewith proposed that the catalyst is directly placed on the wall. Till now, no such concept can persist because the catalysts generally have to be replaced after a certain lifetime. This problem has not been satisfactorily solved for wall-reactors.

In contrast to the fixed bed reactor, monolith reactors are considered as very regular catalyst structure with isotropic reaction condition and lowpressure loss. However, despite intensive effort till today, no convincing concepts are known for the monolith catalysts to be applied in the common tube-bundle reactors. Monolith catalysts are therefore operated adiabatic till now, in all the principals. Rhone Poulenc proposed that the ceramic monolith is so prepared that the neighboring channels can be flowed with different fluids. By a deactivation of the catalysts, the total monolith has to be exchanged. And, the separated influent stream in different channels and the mechanical/thermal stability of ceramic monolith bring up huge difficulty for a large technical operation.

A very typical drive in the early time regarded very compact reactors with intensive heat exchange to a fluid heat carrier. Under the word "Micro-reactors" such reactors are proposed for the de-centralized production of potentially toxic chemicals. However, the known concepts and process/fabrication procedures for this are borrowed from the micro-electronic or micro-system technology and actually suited for the structure in the micron range other than in mm range. The stream channels in the size less than 1 mm seem neither necessary nor advantageous for many reaction-technical requirements.

Thus, the task is to develop a reaction concept whereby the catalyst similar to that in a catalytic wall-reactor in a very narrow contact to the heat carrier is arranged but can be easily removed and replaced. The stream channels should also have a good mass transfer and low pressure drop similar to monolith catalysts. Besides, it should be possible to easily build the reactor and have a wide spectrum of different flow path of fluid and heat carrier.

According to the invention this task is solved through a reactor under the item of claim 1. In the art of a plate heat exchanger the reaction fluid and heat carrier are led in the adjacent channels in co-current or counter-current flow. The catalysts are placed on a wall structure as by a metallic automobile exhaust catalyst. This is so fixed in the stream channels that it simultaneously builds the stream channels for the stream, when the spacer functions between the heat exchanger plates and takes care of a better heat transport from the walls to the catalysts and in the fluid through its direct contact. On the heat carrier side the comparable wall structure is applied, eventually (in some cases) with other dimensions and without catalyst layer. In order to eventually change the catalyst-coated wall structure, the plate packets are not stiffly bonded each other as in brazed or welded plate heat exchangers but made flexible. The feature is reached that the separation wall is fabricated from a long sheet band through an accordion folding and is closed by an outer detachable enclosure. A construction with an accordion separation wall is known from air counter-flow heat exchanger (System Thermo-Z) in the principal. But here it serves as exchangeability of the catalyst-coated wall structures.

The grand form of the invention described in claim 1 can be extended in a proper wise and can fit to specific reaction-technical requirements. The corresponding arrangements are described in the following statement and figures. It shows:

Figure 1 a section of reactor according to the invention where the outer cover is removed.

Figure 2 a reactor cross section and a front view

Figure 3 three possibilities for the stream paths

Figure 4 four options for the make of the wall structures

Figure 5 an option in the cylindrical arrangement

Figure 1 shows a section view of reactor according to the invention where the outer cover including the upper cover is removed. Fluid A and B enter the reactor along the stream paths 9 and 10 on the opposite sides of the accordion separation wall 1 and are distributed into individual stream channels and turned downwards. In the example, fluid

A (stream path 9) is a reactant mixture, fluid B (stream 1 path 10) is a non-reactant heat carrier. Both fluids flow through the stream passage ways 6 that are built from wall structure 4 and wall 1. The wall structures 4 are coated with catalyst in stream path 9 over a certain length.

On it the reaction of fluid A takes place. The generated or needed reaction heat is to greater extent transferred through conduction in the structure 4 on wall 1, because the structure lies on both adjacent walls. It is received in a similar way from another structure 4 on the other wall side and transferred over this structure or directly to heat carrier fluid B. At the lower end of the reactors the structure 4 stops earlier than the wall 1 so that the stream paths 9, 10 leave the reactor in an inverse direction as on the shown head. A reactor cover that is not displayed closes the described internal region from all sides so that the fluids A, B can only enter the inlets at the head and exit through the outlets in the reactor footer.

Figure 2 shows a section (left) and a front view (right) of the reactor in Fig.1 with the both inlet 7 and outlet 8 and the seals of the stream channels on the both forehead sides 11, 12 of the reactors.

Figure 3 shows reactor options with three different stream paths for the both fluid A, B. The left configuration offers: when an exothermic reaction (fluid A) is coupled herewith with an endothermic reaction (fluid B), the reaction heat of the exothermic reaction supplies the heat need of the endothermic reaction.

Figure 3, middle, is a typical configuration for the autothermal operation of a weak exothermic reaction of fluid A, where the colder influent stream is preheated through the hot effluent stream in lower part of the reactor. In the head is an additional heating or cooling apparatus 13 through which the reactor is ignited or the heat is removed during the operation. The both shell tubes in the head serve as inlets of fluid B (side supply) or as outlets of a partial stream.

Figure 3, right, shows a further arrangement possibility, where a heat carrier B in upper part of the reactor is led in counter-current and in the lower part in co-current with respect to a reacting fluid A.

Figure 4 shows proper cross section form for the wall structure 4. By the arrangement with straight flow-through channels the technically common forms with a saw-teeth like channel path can also be applied. Besides, a follow-up catalyst of different activity or specialty can be purposely applied in the reaction zone. According to the invention of the reactor it is achieved that the subsections of wall 4 with different catalyst coating are arranged in sequence. Finally it makes sense that larger flow cross sections in the side of fluid A than in the side of fluid B are designed. According to the invention of the reactor it is achieved that different widths of stream channels 5 are arranged by the folding of the accordion separation wall 1 and the structures 4 with different amplitudes fitted on channels 5 are utilized.

A special arrangement of the last mentioned options describes the configuration of accordion separation wall in an annulus according to Fig.5. In this example, fluid A flows in through the inner tube 14 and is distributed at the stream passage way 6 that is built through the wall structure 4 with the inner folding of the separation wall 1. At the lower end of the reactor it flows back in the inner tube 14 in the same wise. Fluid B is guided in over an annulus 15 in the outer cover and flows in a co-current or a counter-current way relative to fluid A through the outer folding of the separation wall 1 throughout the apparatus. Thereafter it leaves the apparatus via the further annulus 15. The options given in Fig.2 middle and right are realized in an analog wise in a configuration according to Fig.5. If fluid B in Figure 5 is a liquid heat carrier, the wall structure 4 can also be removed in some conditions to improve the heat transfer in the stream channels 5 for fluid B.

To improve the flow distribution of fluid A, B over the width of the stream channels 5 it may make sense to apply spacer structures in entrance –eventually also exit-region 7,8 that make a good transverse mixing. For this purpose, for example, the crossed

web structure, wire mesh or crossed wall structure can be used. Besides, it is meaningful that the gap between the folded separation wall 1 and the reactor cover 2 or the inner tube 4 is additionally sealed through sealing materials (gasket, swelling ton).

**Reference sign index:**

- 1 separation wall (accordion)
- 2 reactor cover (shell)
- 3 catalyst (attached on the structure 4 )
- 4 wall structure
- 5 stream channels built from the folding of 1
- 6 stream passage way between wall structure 4 and walls 1
- 7 fluid inlet in reactor
- 8 fluid outlet in reactor
- 9 stream path fluid 1
- 10 stream path fluid 2
- 11 upper forehead side of the reactor
- 12 lower forehead (footer) side of the reactor
- 13 equipment for heating or cooling
- 14 inner tube
- 15 annular distribution channel in reactor cover

**Patent claims:**

- 1 Reactor, for catalytic gas, gas/liquid and liquid reactions with two parallel stream paths that are separated through fluid-impermeable walls, described hereby that the walls (1) that separated the two stream paths (9) (10) are folded in the flow direction so that the individual foldings build the stream channels and the catalyst (3) is attached on the profiled structures (4) that are located in these channels (5). The structures (4) build the stream passage ways (6), function as a good thermal conduction path to the both adjacent walls (1), and maintain a constant spacing between the adjacent walls (1). The reactor is

enclosed outwards through a cover (2) that includes the inlets and outlets (7), (8) for the both streams paths (9) (10). On the two forehead sides (11) (12) all the stream channels are closed (sealed).

- 2 Reactor described hereby according to claim 1 that a stream path (9) is arranged for the reacting fluid and a stream path (10) for a flowing heat carrier, where the profiled structure (4) on the heat carrier side doesn't contain catalyst or it is missing at all.
- 3 Reactor described hereby according to claim 1 that same or different reactions take place in both the stream passage ways (9) (10) in co-current or counter-current so that a specially desired reaction operation takes place through the heat exchange between the both stream paths (9) (10).
- 4 Reactor described hereby according to claims 1 through 3 that the continuously waved structures of sinusoidal, triangular, trapezoidal or rectangular profile are dealt with by the structures (4), so that the stream paths (6) basically route in the longitudinal direction where the structures (4) in region of inlets and outlets (7), (8) are so slanted or cut that an influent or effluent flows over the whole depth of the stream channels (5).
- 5 Reactor described hereby according to claims 1 through 4 that structures (4) are so placed in sequence into the stream channels (5) arranged for the reacting fluids that stepped levels in the catalytic activity and specialty are given.
- 6 Reactor described hereby according to claims 1 through 5 that extra inlets and outlets in addition to the inlets and outlets (7) (8) are placed and distributed over the reactor length.
- 7 Reactor described hereby according to claims 1 through 6 that the accordion folded wall (1) is laid so around a inner tube (14) that the stream paths (9) and (10) run in the annular space built from inner tube (14) and outer reactor cover (2) and that the influent and effluent flow over the inner tube (14) for a fluid and over an annular vertical channel (15) in outer cover (2) for another fluid.



- 8 Reactor described hereby according to claims 1 through 7 that the accordion wall (1) is broken at a certain height of the reactor or missing so that the stream paths (9) (10) are entirely or partly unified.
- 9 Reactor described hereby according to claims 1 through 8 that the wall (1) is missing or broken at an end of reactors and the entrance for stream path (9) as well as the exit for stream path (10) both lie at the other end of the reactor so that a counter-current of the same fluids with one side turn is established.
- 10 Reactor described hereby according to claims 1 through 9 that in the region of the turn a heating or cooling unit is placed.
- 11 Reactor described hereby according to claims 1 through 10 that in the reactor region the walls (1) are also coated with catalysts.
- 12 Reactor described hereby according to claims 1 through 11 that the spacer structures are used in the part free of wavy structure of the stream channels (5) in the region of inlets and outlets (7) (8). The spacer structures take care of a good flow distribution of the fluid over the entire depth of the stream channels (5).
- 13 Apparatus described hereby according to claims 1 through 12 that is mainly or exclusively used for heat exchange between many fluids.
- 14 Apparatus described hereby according to claims 1 through 13 that the apparatus is fabricated through the profiling and bonding of plastic foil /sheet or metallic sheet.
- 15 Apparatus described hereby according to claims 1 through 14 that the apparatus is partly fabricated through the extrusion from polymer or formed ceramic mass, or through extrusion or strand casting from metals.

**This Page Blank (uspto)**